

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Yukio HEMMI, et al.

GAU:

SERIAL NO: NEW APPLICATION

EXAMINER:

FILED: HEREWITH

FOR: METHOD FOR CONTROLLING WATER QUALITY IN NUCLEAR REACTOR AND NUCLEAR POWER PLANT TO WHICH THE METHOD IS APPLIED

REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS
WASHINGTON, D.C. 20231

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number, filed, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number, filed, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

COUNTRY

APPLICATION NUMBER

MONTH/DAY/YEAR

Japan

2000-300824

September 29, 2000

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number .
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
(B) Application Serial No.(s)
- ☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.


C. Irvin McClelland

Registration No. 21,124



22850

jc821 U.S. PRO
09/964624
09/28/01

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

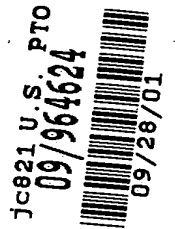
Date of Application: 2000年 9月29日

出 願 番 号

Application Number: 特願2000-300824

出 願 人

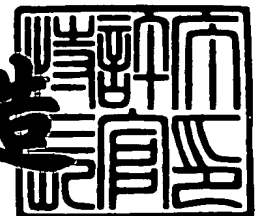
Applicant(s): 株式会社東芝



2001年 4月20日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3031983

【書類名】 特許願

【整理番号】 89B0080061

【提出日】 平成12年 9月29日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 G21D 1/00
G21C 19/307
G21D 3/08

【発明の名称】 原子炉の水質制御方法および原子力発電プラント

【請求項の数】 13

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区浮島町2番1号 株式会社東芝
浜川崎工場内

【氏名】 逸見 幸雄

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市磯子区新杉田町8番地 株式会社東芝
横浜事業所内

【氏名】 山崎 健治

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市磯子区新杉田町8番地 株式会社東芝
横浜事業所内

【氏名】 平沢 肇

【特許出願人】

【識別番号】 000003078

【氏名又は名称】 株式会社 東芝

【代理人】

【識別番号】 100078765

【弁理士】

【氏名又は名称】 波多野 久

【選任した代理人】

【識別番号】 100078802

【弁理士】

【氏名又は名称】 関口 俊三

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011899

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 原子炉の水質制御方法および原子力発電プラント

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 原子炉内への持ち込みおよび原子炉内の構造材料から炉水中に腐食放出される鉄量を、前記原子炉内へ持ち込まれたニッケル量および前記原子炉内で発生したニッケル量のいずれか一方の 2 倍以上にし、前記原子炉内への系統水の鉄の上限濃度値を 0. 1 0 p p b 以下にすることを特徴とする原子炉の水質制御方法。

【請求項 2】 請求項 1 記載の原子炉の水質制御方法において、前記鉄の上限濃度値を 0. 0 4 p p b 以下にすることを特徴とする原子炉の水質制御方法。

【請求項 3】 請求項 1 記載の原子炉の水質制御方法において、前記原子炉の給水加熱器および燃料集合体に用いられているニッケル基合金材料を予備酸化処理したことを特徴とする原子炉の水質制御方法。

【請求項 4】 請求項 1 記載の原子炉の水質制御方法において、前記原子炉水中に天然亜鉛を導入し、その亜鉛イオン濃度値を 5 p p b 以下に制御することを特徴とする原子炉の水質制御方法。

【請求項 5】 原子炉一次系に設置された配管および機器をステンレス鋼から構成したことを特徴とする原子力発電プラント。

【請求項 6】 請求項 5 記載の原子力発電プラントにおいて、前記原子炉一次系に、ニッケルをフェライトおよび鉄基合金のいずれかのろ過材に吸蔵させる炉水高温浄化装置を設置したことを特徴とする原子力発電プラント。

【請求項 7】 請求項 5 記載の原子力発電プラントにおいて、原子炉の給水加熱器および燃料集合体をフェライトから構成したことを特徴とする原子力発電プラント。

【請求項 8】 請求項 5 記載の原子力発電プラントにおいて、原子炉内に供給される系統水から鉄を除去する鉄除去手段を設置したことを特徴とする原子力発電プラント。

【請求項 9】 請求項 8 記載の原子力発電プラントにおいて、前記鉄除去手段は、系統水の温度が低い復水の場合、粒子状およびイオン状の鉄を除去する一

方、ドレン水のように温度が中高温の場合、主として粒子状の鉄を除去することを特徴とする原子力発電プラント。

【請求項 1 0】 請求項 9 記載の原子力発電プラントにおいて、前記系統水が低温の場合に用いる鉄除去手段は、 $0.45\mu\text{m}$ 以下の細孔を有し、かつろ過面積を大きくしたフィルターとイオン交換樹脂塔との複合除去装置であることを特徴とする原子力発電プラント。

【請求項 1 1】 請求項 9 記載の原子力発電プラントにおいて、前記系統水が中高温の場合に用いる鉄除去手段は、耐熱性樹脂、セラミックス、酸化、炭化および窒化によってセラミックスを形成する元素、炭素材料から選択された少なくとも一種からなる $0.45\mu\text{m}$ 以下の細孔のフィルターを有する除去装置であることを特徴とする原子力発電プラント。

【請求項 1 2】 請求項 5 ないし 1 1 のいずれかに記載の原子力発電プラントにおいて、前記原子炉の炉心構造材に用いられている材料のコバルト含有率を 0.01% 以下にすることを特徴とする原子力発電プラント。

【請求項 1 3】 請求項 5 ないし 1 1 のいずれかに記載の原子力発電プラントにおいて、前記原子炉一次系に設置されたタービン翼および大口径弁をニッケル基合金から構成したことを特徴とする原子力発電プラント。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、原子力発電プラントにおける原子炉水のコバルト放射能濃度を低減させるとともに、炉心外表面へのコバルト放射能の移行量を低減させる原子炉の水質制御方法およびこれらの水質制御を行うのに有効なステンレス鋼へ材料変更した原子力発電プラントに関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

原子力発電プラントでは、原子炉水のコバルト放射能濃度を低減させるとともに、炉心外表面へのコバルト放射能の移行量を低減させるため、これまでに種々の水質制御方法が案出され実施されてきた。その主な方法を列記すると以下のよ

うになる。

【 0 0 0 3 】

原子炉水のコバルト放射能濃度を低減させるには、給水に鉄を付加させる（給水鉄濃度で 0.3 ないし 0.5 p p b 以上）ことにより、原子炉内への持ち込みおよび原子炉内の構造材料から炉水中に腐食放出される鉄量を、原子炉内への持ち込みまたは原子炉内で発生したニッケル量の 2 倍以上にして炉水のコバルト放射能濃度を低減させる方法がある。

【 0 0 0 4 】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、この方法では、炉水のイオンコバルト放射能濃度を低減させることができるものの、炉心外へのイオンコバルト放射能濃度の移行速度が増加するとともに、粒子状物質による放射能濃度を逆に増加させるなどの課題がある。また、表面処理の異なる耐食性に優れた燃料被覆管材料を使用した後は、この燃料被覆管表面に付着した粒子からの放射能の溶出が増加し、炉水のイオンコバルト放射能濃度の低減率も小さくなり、炉心外へのイオンコバルト放射能の低減効果は期待することができなくなった。

【 0 0 0 5 】

炉心外表面へのコバルト放射能の移行を低減する水質制御方法としては、亜鉛注入方法がある。しかし、この亜鉛注入方法は放射化により $Zn-65$ の放射能を生成するため、天然の亜鉛を用いることができず、高価な遠心分離装置で $Zn-64$ を除去した亜鉛を多量に用いなければならない。

【 0 0 0 6 】

このような状況を踏まえ、炉水のイオンコバルト放射能濃度は若干増加するものの、炉心外へのイオンコバルト放射能濃度の移行速度を大幅に低減可能な極低鉄運転が開発された。この方法は、燃料被覆管表面に付着した粒子を大幅に低減させることができるため、停止時の残留熱を除去する原子炉残留熱除去系（以下、RHR系という）で粒子状物質による放射能濃度を大幅に低減させることができた。しかし、上記極低鉄運転では、燃料被覆管表面に付着した粒子が剥離し易いため、燃料交換プールなどの放射能を低減させることができないという課題が

ある。

【0007】

本発明は、上記事情を考慮してなされたもので、炉水のイオンおよび粒子状物質によるコバルト放射能濃度を同時に大幅に低減させ、炉心外表面へのコバルト放射能の移行量を低減させる原子炉の水質制御方法および原子力発電プラントを提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明に係る原子炉の水質制御方法では、まず原子炉においてイオンおよび放射能の発生源となっている燃料集合体における燃料被覆管表面に付着した NiFe_2O_4 の量を大幅に低減させるため、放射能発生源である原子炉内への持ち込みを極力抑制する。原子炉内に供給される給水などの系統水中に含まれる鉄を上限濃度値として 0.10ppb 以下、好ましくは 0.04ppb 以下で、特に好ましくは可及的にゼロにする。その場合でも炉水のニッケル濃度が 0.2ppb 以上にならないようにする。

【0009】

このため、本発明に係る原子力発電プラントでは、ニッケルの主発生源である高圧給水加熱器の熱交換チューブ材および炉内の燃焼集合体の構成部品である燃料ばねをニッケル基合金材料からフェライトに変更し、または本発明に係る原子炉の水質制御方法では、これら材料の予備酸化処理を行うことにより腐食を抑制し、ニッケルの発生量を大幅に低減させる。これにより、鉄の発生量がニッケルの発生量の2倍以上になるように、炉水のコバルト放射能を大幅に低減させる。炉水のイオンコバルト放射能の発生源としては、燃料被覆管表面の NiFe_2O_4 の他に燃料ばねもあり、上記のように予備酸化処理および燃料ばねの材料を変更することによって腐食を抑制することで、その発生も大幅に抑制することができる。

【0010】

また、給水から炉内への鉄持ち込みを極力ゼロに近づけるためには、復水以外の系統水について鉄除去手段で除去する必要がある。そして、炉内での腐食発生

による鉄を極力抑制するため、原子炉一次系に設置された配管および機器の材料を炭素鋼から本発明に係る原子力発電プラントのようにステンレス鋼の耐食性材料に変更すれば、特に停止時や待機時の保管対策などの経費を節減することができる。

【 0 0 1 1 】

さらに、原子炉一次系にフェライトまたは鉄基合金のろ過材を用いた炉水高温浄化装置を設置すると、原子炉内での炉水中に腐食放出される鉄量を増加せずに、給水から持ち込まれ、または原子炉内で発生したニッケルを除去することができる。

【 0 0 1 2 】

さらにまた、鉄およびニッケルを極力抑制した条件下では、鉄から生成される $Mn-54$ や $Fe-59$ およびニッケルから生成される $Co-58$ に比べて $Co-60$ の被曝への寄与率が増加する。したがって、コバルトの主要発生源である炉心構造材や大口径弁に用いられている材料を低コバルト材へ変更することが効果的である。

【 0 0 1 3 】

すなわち、本発明に係る原子炉の水質制御方法は、請求項 1 に記載したように原子炉内への持ち込みおよび原子炉内の構造材料から炉水中に腐食放出される鉄量を、前記原子炉内へ持ち込まれたニッケル量および前記原子炉内で発生したニッケル量のいずれか一方の 2 倍以上にし、前記原子炉内への系統水の鉄の上限濃度値を 0.10 ppb 以下にすることを特徴とする。そして、請求項 2 に記載したように前記鉄の上限濃度値は、 0.04 ppb 以下にすることが好ましい。

【 0 0 1 4 】

これまでの知見から、コバルトの化学的挙動はニッケルの挙動と類似している。また、コバルトの発生量は、ニッケルの $1/100$ のオーダーで小さいため、ニッケルに随伴した挙動をとる。さらに、国内の沸騰水型原子炉 (BWR) プラントの実績から鉄の発生量がニッケルの発生量の 2 倍以上であれば、炉水のニッケル濃度は 0.2 ppb 以上にはならないことは周知の事実である。

【 0 0 1 5 】

これは、 $\text{Fe}-\text{Ni}-\text{H}_2\text{O}$ 系で NiFe_2O_4 が熱力学的に安定で、下記の(1)式の反応により NiFe_2O_4 が生成されコバルトも安定に取り込まれ $\text{Co}-60$ イオン濃度が低減される。 NiFe_2O_4 のニッケルの溶解度は、約0.2ppbであると理解されている。給水に鉄を付加させた場合には、燃料被覆管表面に生成される NiFe_2O_4 が増加し、その NiFe_2O_4 の剥離により粒子状の $\text{Co}-60$ の放射能は増加する。

【0016】

【化1】



【0017】

一方、鉄の発生量がニッケルの発生量の2倍以下になると、炉水のニッケル濃度は0.20ppb以上になり、燃料被覆管表面では沸騰濃縮のため熱力学的に安定な NiO が生成され、この NiO に取り込まれた Co が放射化されて $\text{Co}-60$ となって再溶出するためイオン放射能濃度も増加する。

【0018】

このため、原子炉内への持ち込みおよび原子炉内の構造材料から炉水中に腐食放出される鉄量を極力抑制し、かつ原子炉内への持ち込みおよび原子炉内の構造材料から炉水中に腐食放出される鉄量が原子炉内への持ち込みまたは原子炉内で発生したニッケル量の2倍以上にすることが、炉水のイオンおよび粒子状の $\text{Co}-60$ を同時に低減させる条件となる。同様に、ニッケルから生成される $\text{Co}-58$ についても同様な結論を得る。

【0019】

一方、給水の鉄濃度を低減する技術については、復水浄化系に中空糸フィルターとイオン交換樹脂塔からなる高性能鉄除去装置を備えたプラントにおいて既に0.04ppbの実績を有する。

【0020】

現行の耐食性に優れた燃料被覆管材料を使用する限りでは、被覆管表面の NiFe_2O_4 に捕捉される $\text{Co}-60$ に比べて溶出する $\text{Co}-60$ の方が量的に多

く、被覆管表面の NiFe_2O_4 は発生源となっている。したがって、 Co-60 イオンの発生量は、被覆管表面の NiFe_2O_4 を低減させればさせるほど小さくなる。また、粒子状の Co-60 は、被覆管表面の NiFe_2O_4 が剥離したものであるから、被覆管表面の NiFe_2O_4 を低減させればさせるほど好ましい。被覆管表面の NiFe_2O_4 は、給水から原子炉内へ持ち込まれた鉄から生成されるので、給水の鉄濃度を現行条件より一段と低減することも重要である。

【0021】

BWRプラントにおける鉄の主要発生源は、ニッケルの主発生源である給水加熱器の熱交換チューブ材および炉内に用いられているニッケル基合金材料である。したがって、本発明の請求項3に記載したように現行材料を予備酸化処理することにより、腐食を低減させ、ニッケルの発生量を大幅に低減させることができる。これにより、鉄の発生量をニッケルの発生量の2倍以上にすることができる。

【0022】

また、本発明では、請求項4に記載したように原子炉水中に天然亜鉛を導入し、その亜鉛イオン濃度値を5ppb以下に制御することにより、燃料被覆管表面以外での ZnFe_2O_4 の生成をゼロにすることができる。そして、本発明では、燃料被覆管表面での ZnO の生成や ZnFe_2O_4 の生成による Zn-65 の生成を抑制することができる。給水鉄濃度値が、0.04ppbの場合、国内BWRプラントの給水鉄量の $1/10$ 、米国BWRの $1/50$ である。この場合、燃料被覆管表面で生成される Zn-65 の量は、天然亜鉛を使用した場合でも米国プラントでの Zn-64 を低減させた高価な亜鉛を用いた場合と同程度の生成量にしかない。

【0023】

ところで、BWRにおいては、原子炉冷却材浄化系（以下、RWCU系という）やRHR系では配管や機器の胴に炭素鋼が使用されている。プラント運転時におけるRWCU系の炭素鋼の腐食はステンレス鋼の2倍程度と低いが、停止時には水質が悪化するため炭素鋼の腐食は顕著になる。また、RHR系は、プラント

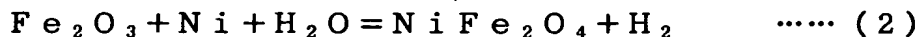
運転時に待機状態にある炭素鋼の腐食が顕著である。このため、現行の材料では投入前にフラッシングなどを行って鉄錆を除去している。これらの運転や保管により、これらの系統から原子炉内へ流入する鉄量は給水からの持ち込みに比べて無視できる程度になっている。これらの系統を本発明の請求項 5 に記載したようにステンレス鋼にすれば、これらの操作が不要になる。

【 0 0 2 4 】

また、本発明の請求項 6 に記載したようにフェライトまたは鉄基合金のいずれかのろ過材とする炉水高温浄化装置を用いた場合には、(2) 式に示す反応によりニッケルが捕捉され、 NiFe_2O_4 を生成する。したがって、炉水のニッケルを除去することができる。

【 0 0 2 5 】

【化 2】



【 0 0 2 6 】

BWR プラントにおける鉄の主要発生源は、ニッケルの主発生源である給水加熱器の熱交換チューブ材および炉内の燃料集合体に用いられているニッケル基合金材料である。したがって、本発明では請求項 7 に記載したように現行材料よりニッケル含有量が小さい耐食性材料および腐食が小さい材料としてフェライトから構成することにより、腐食を低減させ、ニッケル発生量を大幅に低減させることができる。これにより、鉄の発生量をニッケル発生量の 2 倍以上にすることができる。

【 0 0 2 7 】

ニッケルの量を大幅に低減することができれば、炉内のステンレス鋼の腐食によって生成するフェライトが存在するため、給水の鉄濃度をゼロに低下させても、鉄発生量はニッケル量の 2 倍以上になる。この場合、給水の鉄濃度は低下すればするほど好ましい。給水からの鉄濃度をゼロにするためには、本発明の請求項 8 ～ 11 に記載したように鉄除去装置が必要になる。なお、ニッケルの発生量の低減度合いにより、鉄発生量はニッケル量の 2 倍以上になる条件が現行の 0. 0

4 p p b とゼロの間になる場合も存在する。

【 0 0 2 8 】

また、請求項 9 に記載したように高性能鉄除去装置に要求される機能は、鉄の性状やフィルター材質への影響で温度が重要因子である。

【 0 0 2 9 】

鉄持ち込みを極力抑制した条件下で、燃料ばねなどの炉心構造材に使われている材料から直接炉水にイオンとして放出する割合は、全発生量の約 2 / 3 を占めている。これら材料のコバルト含有率のスペック値は 0 . 0 5 % 以下で実績値としては 0 . 0 3 % である。したがって、本発明では請求項 1 2 に記載したようにスペック値を 0 . 0 1 % 以下に低減させることにより、炉水のイオン C o - 6 0 濃度を概略半減させることができる。

【 0 0 3 0 】

また、鉄持ち込みを極力抑制した条件下で、炉水のクラッド C o - 6 0 を低減するためにはコバルトの発生量を低減させればよい。コバルトの発生源は、現状、タービン翼や大口径弁の C o 基合金がそれぞれ 3 0 % および 5 0 % 占める。したがって、本発明では請求項 1 3 に記載したように C o 基合金であるステライトをコルモノイなどのニッケル基合金に変更することにより、コバルト発生量を現行の 1 / 4 に低減させることができる。

【 0 0 3 1 】

なお、この材料変更と燃料ばねなどの炉心構造材に用いられている材料の低コバルト化の両者の対策を実施すると、さらに炉水のイオン C o - 6 0 濃度を半減させて 1 / 3 以下にすることができる。

【 0 0 3 2 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施例を図面に基づいて説明する。

【 0 0 3 3 】

図 1 は本発明に係る原子炉の水質制御方法および原子力発電プラントを改良型沸騰水型原子炉 (A B W R) 一次系に適用した一実施例を示す概略系統図である。

【 0 0 3 4 】

また、図 1 は原子炉内へ持ち込みおよび原子炉内の構造材料の腐食によって発生する鉄とニッケルの発生源について示している。

【 0 0 3 5 】

図 1 に示すように、給水系 1 からの給水などの系統水は、原子炉 2 内に持ち込まれ、この持ち込まれた炉水は、原子炉 2 内の核燃料の核分裂による熱によって加熱され蒸気になって高圧タービン 3 および低圧タービン 4 へ送られて発電を行う。

【 0 0 3 6 】

また、炉水は停止時に R H R 系 5 に送られ、この R H R 系 5 に設置された R H R ポンプ 6 により強制循環され、R H R 熱交換器 7 により原子炉 2 内の炉水から効率的に停止時の残留熱が除去される。

【 0 0 3 7 】

さらに、起動時および停止時において炉水の一部は R W C U 系 8 に導入され、R W C U 熱交換器 9 で冷却された後、R W C U 除去装置 1 0 によって不純物が取り除かれて R W C U ポンプ 1 1 により給水系 1 に戻される。

【 0 0 3 8 】

一方、発生した蒸気の一部は、高圧給水加熱器 1 2 および低圧給水加熱器 1 3 で給水の予熱に使用される。発電を行った後の蒸気は、復水器 1 4 で水に戻され、給水系 1 から原子炉 2 内に腐食生成物が持ち込まれるのを回避するために、鉄除去手段としての復水フィルター 1 5 および復水脱塩器 1 6 により不純物が除去される。

【 0 0 3 9 】

また、高圧給水加熱器 1 2 および低圧給水加熱器 1 3 には、それぞれ給水管 1 と接続する高圧給水ドレン配管 1 7 および低圧給水ドレン配管 1 8 が接続され、これらドレン配管 1 7, 1 8 には、それぞれ高圧ドレンポンプ 1 9、低圧ドレンポンプ 2 0 と、鉄除去手段としての高性能鉄除去装置 2 1, 2 2 とが介挿されている。なお、図 1 において原子炉 2 に隣接して燃料交換プール 2 3 が設置されている。また、図 1 においては、後述する炉水高温浄化装置が省略されている。

【 0 0 4 0 】

ところで、プラント運転時には、RHR系5は待機状態にあり、このRHR系5からの鉄の流入はない。原子炉水の流れる原子炉2内およびRWCU系8において鉄やニッケルが発生する。この原子炉2内の各機器には、ステンレス鋼およびNi基合金が用いられている。

【 0 0 4 1 】

そして、ステンレス鋼の腐食によって生成した鉄およびニッケルは、そのほとんどが材料表面に生成する酸化物を形成する。ステンレス鋼の主成分は鉄であるので、 NiFe_2O_4 を形成するのに鉄がニッケルに対し過剰である。このため、原子炉2内のNi基合金で発生したニッケルや給水系1から原子炉2内へ持ち込まれたニッケルが原子炉水を通じて NiFe_2O_4 を形成するのに不足している化学当量分だけ捕捉するに十分である。

【 0 0 4 2 】

一方、Ni基合金の場合は、ステンレス鋼とは逆に鉄に対しニッケルが過剰であるため、原子炉水に過剰分のニッケルが放出される。この原子炉水に放出されたニッケルのほとんどは、燃料集合体の燃料ばねを構成するNi基合金からのもので、平衡炉心での発生量は給水換算濃度値で0.04ppbである。

【 0 0 4 3 】

また、RWCU系8では、系統配管やRWCU熱交換器9の胴部に炭素鋼が使用されている。ステンレス鋼はRWCU熱交換器9の熱交換チューブ材に使用されている。ここで、運転時の炭素鋼の腐食速度は、ステンレス鋼の高々2倍であり、接液面積はステンレス鋼の5%にも満たない。腐食した鉄はステンレス鋼と同様 NiFe_2O_4 を形成する。現行の原子炉内での鉄およびニッケルの発生量を平衡炉心達成後の給水濃度換算で表す。腐食時間依存性があるためプラント運転履歴時間の関数として表わされ、鉄およびニッケルの発生量は、それぞれ $12.6t^{-0.5}\text{ppb}$ [t:EFPH (Effective Fuel Power Hour: 実効全出力)] および $(3.4t^{-0.5} + 0.04)\text{ppb}$ (t:EFPH) となる。ここで、0.04はNi基合金である燃料ばねからの発生寄与である。

【0044】

次に、給水系1から原子炉2内への鉄およびニッケルの流入形態について述べる。鉄の主発生源は、主蒸気弁（図示せず）、高圧タービン3、低圧タービン4および復水器14を構成する炭素鋼や低合金鋼である。これらの発生源から放出された鉄は、次の3つのルートを通じて給水系1に流入する。

【0045】

第1のルートは、復水器14からの復水中に含まれる粒子状の鉄が復水フィルター15によりそのほとんどが除去される。さらに、復水脱塩器16でイオン鉄が一部除去され、給水系1を経て原子炉2内に流入するものである。

【0046】

第2のルートは、低圧給水ドレン配管18から復水器14の下流側の復水に流入し、復水脱塩器16で粒子状およびイオン鉄が一部除去され、給水系1を経て原子炉2内に流入するものである。

【0047】

第3のルートは、高圧給水ドレン配管17から給水系1に流入し、そのまま原子炉2内に流入するものである。

【0048】

現行システムにおいて、給水系1の鉄濃度は、 0.04 ppb 程度に維持されている。また、現行での第1、2および3ルートの寄与率は、それぞれ50%、30%および20%である。

【0049】

一方、給水系1から原子炉2内に流入するニッケルは、高圧給水加熱器12の熱交換チューブ材からであり、つまり胴側は高圧給水ドレン配管17から給水系1に流入し、その熱交換チューブ材の内側から発生したものとの和となり、原子炉2内に流入する。また、給水の濃度は、高圧給水加熱器12の熱交換チューブ材に用いられているステンレス鋼の腐食時間依存性があるため、プラント運転履歴時間の関数として表示され、 $12.6 t^{-0.5} \text{ ppb}$ ($t: \text{EFPH}$) となる。

【0050】

以上のことから、鉄およびニッケルの全発生量を給水濃度換算で示すと下記のようになる。

【0051】

【数1】

全鉄発生給水濃度換算

$$= 0.04 + 12.6 t^{-0.5} (t : \text{EFPH}) \quad \dots\dots (3)$$

【0052】

【数2】

全ニッケル発生給水濃度換算

$$= 0.04 + 12.6 t^{-0.5} + 3.4 t^{-0.5} (t : \text{EFPH}) \quad \dots\dots (4)$$

【0053】

(3) 式の右辺の第1項は、給水系1から原子炉2内に持ち込まれる鉄量で、第2項は炉内のステンレス鋼を主体とする発生鉄量である。

【0054】

一方、(4) 式の右辺の第1項は、燃料ばねからの発生ニッケル量、第2項は給水系1から原子炉2内に持ち込まれるニッケル量、第3項は炉内のステンレス鋼を主体とする発生ニッケル量である。

【0055】

ここで、全鉄発生量が2倍の全ニッケル発生量を上回る条件は、燃料ばねからの発生量を1/2以下にし、給水系1からのニッケルの原子炉2内への持ち込みを1/4.4以下に低減させればよい。なお、給水系1から原子炉2内に持ち込まれる鉄量が給水鉄濃度値で0.04 ppbではなく、0.10 ppb以下であれば、給水からのニッケルの原子炉2内への持ち込みのみを1/4.4以下に低減させればよい。

【0056】

また、本実施例では、燃料ばね材を現行のNi基合金、すなわちインコネルX

－750からインコネルX－718のNi基合金に変更（インコネルX－718の腐食率はインコネルX－750の1/4程度）し、高圧給水加熱器12の熱交換チューブ材のステンレス鋼に高温大気酸化処理を行えば、腐食速度を1/5にすることができるので、全鉄発生量が2倍の全ニッケル発生量を上回る条件を満たす。

【0057】

この場合、給水の鉄濃度値が0.02ppbに低減した場合でも全鉄発生量が2倍の全ニッケル発生量を上回る条件を満たす。なお、燃料ばねとしてNi基合金ではなく、ステンレス鋼などのFe基合金を代替すれば、燃料ばねはニッケルの発生源ではなく、ニッケルを捕捉する役割を果たすので、給水の鉄濃度をゼロにした場合でも全鉄発生量が2倍の全ニッケル発生量を上回る条件を満たす。

【0058】

ここで、高圧給水加熱器12の熱交換チューブ材にニッケル含有量の少ないフェライト系のステンレス鋼を用いれば（4）式の右辺の第2項の給水系1から原子炉2内に持ち込まれるニッケル量をほとんどゼロにすることができる。また、燃料ばねの腐食低減により、燃料ばねから炉水に放出されるCo-60およびCo-58イオンも低減させることができる。

【0059】

現行では、図1に示すRHR系5やRWCU系8に炭素鋼が使用されている。プラント運転時におけるRWCU系8の炭素鋼の腐食は、ステンレス鋼の2倍程度で低いが、停止時や待機時にあるRHR系5やRWCU系8での炭素鋼の腐食速度が大きくなる。特に、除去装置が設置されておらず、また待機時間の長いRHR系5では鉄の発生は無視できない。したがって、現行では投入前にフラッシングなどにより鉄錆を除去しなければならない。そのため、本実施例のように原子炉一次系に設置されたRHR系5やRWCU系8をステンレス鋼から構成すれば、これらの操作が不要になる。

【0060】

さらに、本実施例では、図2に示すように原子炉一次系におけるRHR系5およびRWCU系8に、ニッケルをフェライトまたは鉄基合金のろ過材に吸蔵させ

る炉水高温浄化装置 2 5 が設置されている。

【 0 0 6 1 】

そして、本実施例は、(3) 式において第 2 項に相当する炉内での鉄の発生量を炉水へ放出させずに増加させることにある。フェライトまたは鉄基合金のろ過剤とする炉水高温浄化装置 2 5 を用いた場合、(2) 式に示す反応によりニッケルが捕捉され、 NiFe_2O_4 を生成する。したがって、炉水のニッケルを除去することができる。

【 0 0 6 2 】

炉水高温浄化装置 2 5 は、図 2 に示すように R W C U 系 8 において R W C U 熱交換器 9 の上流側で分岐され、ポンプ 2 6 を介して接続されている。また、炉水高温浄化装置 2 5 は、R H R 系 5 において R H R ポンプ 6 の下流側に R H R 熱交換器 7 をバイパスするように設置してもよい。したがって、炉水高温浄化装置 2 5 は、基本的にポンプと組み合わせて設置され、炉水を採取し浄化水を原子炉 2 内に戻すようにすればよい。

【 0 0 6 3 】

炉水高温浄化装置 2 5 は、図 3 に示すように容器 3 0 を有し、この容器 3 0 の上部の一側には取水口 3 1 が、他側には逆洗水注入口 3 2 が設けられている。容器 3 0 の底部にはドレン水口 3 3 が設けられている。また、容器 3 0 の下部には給水口 3 4 が設けられている。なお、この給水口 3 4 には給水ラインを介して汚染度の高い炉水が供給され、取水口 3 1 からはこの炉水高温浄化装置 2 5 により浄化された炉水が排水ラインを介して排出されるように構成されている。

【 0 0 6 4 】

容器 3 0 内の取水口 3 1 および逆洗水注入口 3 2 より低い位置に水平方向に延びる上部支持板 3 5 が設けられ、この上部支持板 3 5 には複数の孔が形成されており、各孔に中空膜管 3 6 の上端が差し込まれる。なお、容器 3 0 における上部支持板 3 5 の上側の空間と下側の空間は、上部支持板 3 5 により完全に仕切られており、前記上側の空間と下側の空間との間における水の移動は中空膜管 3 6 を介してのみ可能となっている。

【 0 0 6 5 】

この中空膜管 3 6 は、その外層として微細な粒子を捕捉する差圧の生じ易い微細な孔が形成されたスキン層と、このスキン層を保持する基質層とを備えた二層構造となっている。

【 0 0 6 6 】

容器 3 0 内の給水口 3 4 より低く、かつドレン水口 3 3 より高い位置には、水平方向に延びる下部支持板 3 7 が設けられている。この下部支持板 3 7 には、複数の孔が形成されている。下部支持板 3 7 は孔の開いていない部分で、中空膜管 3 6 の下端を支持しており、下部支持板 3 7 は中空膜管 3 6 の下端を閉塞している。したがって、容器 3 0 における下部支持板 3 7 の上側の空間と下側の空間における水の移動は下部支持板 3 7 の孔を介してのみ可能となっている。

【 0 0 6 7 】

ところで、SUS 3 0 4 や SUS 3 1 6 などのオーステナイトステンレス鋼の粒子をろ過材として用いる場合には、炉心外のステンレス鋼の接液面積の約 1.6 倍に相当するろ過剤を用いれば、全鉄発生量が 2 倍の全ニッケル発生量を上回る条件を満たす。

【 0 0 6 8 】

また、本実施例は、ニッケルを低減することにより、鉄の発生量をニッケルの発生量の 2 倍以上にしている。前述したように、ニッケルの主発生源は図 1 に示す高圧給水加熱器 1 2 の熱交換チューブ材のステンレス鋼（オーステナイト系）と原子炉 2 内に装荷されている燃料集合体に使われている X-7 5 0 の Ni 基合金である。そして、本実施例では、高圧給水加熱器 1 2 の熱交換チューブ材および原子炉 2 内に装荷されている燃料集合体がフェライトから構成されている。

【 0 0 6 9 】

オーステナイト系ステンレス鋼の場合、4 2 5℃で 2 時間の高純度大気中および 3 5 0℃で 5 時間の 3 % 水蒸気を含む高純度大気中での腐食放出は 1 / 5 以下を達成することができる。また、ニッケル含有率の小さいフェライト系ステンレス鋼を用いた場合、その腐食速度は、オーステナイト系ステンレス鋼と同等以上であるので、ニッケルの発生量は 1 / 5 以下で、ほとんど無視できる程度になる。なお、材料コストはオーステナイト系ステンレス鋼より低い。

【 0 0 7 0 】

燃料ばねについては、インコネル X-750 より耐食性に優れたインコネル X-718 (Cr と Fe の含有率が高い) を用いてインコネル X-750 と同様、時効熱処理過程で大気酸化することにより、内層にクロムリッチな酸化物、外層にフェライトの酸化物からなる X-750 より安定な酸化物が形成される。腐食速度がオーステナイト系ステンレス鋼と同様な $2 \text{ m d m (mg/dm}^2\text{/month)}$ と現行材の $1/4$ 以下になる。また、材料コストは X-750 より安価である。さらに、燃料ばね材として冷間加工したオーステナイト系ステンレス鋼を用いることができる。この場合、燃料ばねは、ニッケルの発生源ではなく、ニッケルを捕捉する。

【 0 0 7 1 】

さらに、本実施例では、図 1 に示すように原子炉 2 内に供給される給水系 2 から鉄を除去する復水フィルター 15 および鉄除去装置 21, 22 を設置して給水から持ち込まれる鉄を一段と低減している。

【 0 0 7 2 】

すなわち、給水の温度が低い復水の場合には、復水フィルター 15 により粒子状およびイオン状の鉄を除去する一方、ドレン水のように温度が中高温の場合には、鉄除去装置 21, 22 により主として粒子状の鉄を除去する。

【 0 0 7 3 】

なお、復水フィルター 15 は、 $0.45 \mu\text{m}$ 以下の細孔を有し、かつブリーツ（襞）状または中空糸のようにろ過面積を大きくしたフィルターとイオン交換樹脂塔との複合除去装置である。

【 0 0 7 4 】

ところで、現行のプラント設計仕様でも給水鉄濃度値は 0.04 ppb を確保することができる。図 1 に示す高圧給水ドレン配管 17 および低圧給水ドレン配管 18 の寄与は、 0.04 ppb の 70% を占める。なお、これらの系統での鉄の形態は、復水に比べてドレン水の温度が高く、溶存酸素濃度が高いため粒子状の形態をとり、 $0.45 \mu\text{m}$ のフィルターを通過する鉄は、検出限界 (0.01 ppb 、主としてイオン鉄) 以下である。

【 0 0 7 5 】

したがって、この高圧給水ドレン配管 1 7 および低圧給水ドレン配管 1 8 に、耐熱性材料（四ふっ化エチレン樹脂やポリイミドなどの耐熱性樹脂、セラミックス、酸化、炭化および窒化によってセラミックスを形成する元素、チタン合金およびステンレス鋼などの金属およびこれら材料を予備酸化処理して腐食を抑制した材料、チタン合金を窒化または炭化処理した材料、 Si_3N_4 や SiC などの高温水で安定な窒化物および炭化物、炭素繊維などの炭素材料から選択された少なくとも一種）からなり、かつブリーツ状や中空糸とし、差圧上昇を抑制した $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 以下の細孔のろ過フィルターを備えた高性能鉄除去装置 2 1, 2 2 として使用することができる。

【 0 0 7 6 】

なお、現行の復水フィルターとして日本においては中空糸が用いられているが、本実施例では、上記のようにこれと同等の除去性能をもつブリーツ状フィルターで置き換えた復水フィルター 1 5 でもよい。

【 0 0 7 7 】

さらに、本実施例では、燃料被覆管表面以外での ZnFe_2O_4 の生成を行わず、かつ燃料被覆管表面上での ZnFe_2O_4 の生成を極力抑制することにより、ステンレス鋼製のイオン放射能の蓄積を安価な亜鉛を注入することにより抑制している。

【 0 0 7 8 】

すなわち、本実施例では、原子炉 2 水中の亜鉛濃度値を ZnFe_2O_4 の亜鉛の溶解度である 5 ppb 以下にすることにより、沸騰濃縮する燃料被覆管表面以外では、 ZnFe_2O_4 が生成しない。したがって、炉心構造材に取り込まれる Zn による Zn-65 の生成はない。

【 0 0 7 9 】

さらに、鉄量を抑制することにより、燃料被覆管表面での沸騰濃縮も最小にすることができるので、 ZnO の生成や ZnFe_2O_4 の生成による Zn-65 の生成も抑制することができる。 0.04 ppb の場合には、国内 BWR プラントの給水鉄量の $1/10$ 、米国 BWR の $1/50$ であり、燃料被覆管表面で生成さ

れる $Zn-65$ の量は、天然亜鉛を使用した場合でも米国プラントにおいて $Zn-64$ を低減した高価な亜鉛を用いた場合と同程度の生成量 ($Zn-64$ を低減率は、天然の $1/10$ ないし $1/50$ 程度) にしかならない。亜鉛対策を含め、給水鉄濃度をパラメータとし、イオンおよび粒子状線源による被曝低減効果を示すと図4に示すようになる。なお、給水鉄濃度値を 0.04 ppb で亜鉛注入した場合は、被曝は $1/10$ になる。

【0080】

さらにまた、本実施例では、原子炉2の炉心構造材に用いられている材料のコバルト含有率を 0.01% 以下にしている。

【0081】

すなわち、鉄持ち込みを極力抑制した条件下で、燃料ばねなどの炉心構造材に使われている材料から直接炉水にイオンとして放出する割合は、全発生量の約 $2/3$ を占めている。これら材料のコバルト含有率のスペック値は 0.05% 以下で実績値としては 0.03% である。したがって、本実施例ではスペック値を 0.01% 以下に低減させることにより、炉水のイオン $Co-60$ 濃度を概略半減させることができる。

【0082】

また、本実施例では、原子炉2の一次系に設置されたタービン翼や大口径弁の Co 基合金を Ni 基合金に変更することにより、コバルト発生量を低減させることを組み合わせ、給水鉄濃度値を 0.01 ppb にすることにより、被曝を $1/50$ 以下にすることができる。

【0083】

【発明の効果】

以上説明したように本発明によれば、炉水のイオンおよび粒子状物質によるコバルト放射能濃度を同時に大幅に低減させることができ、炉心外表面へのコバルト放射能の移行量を低減させることができる。これにより、定期検査の被曝や放射性廃棄物のゼロ化により放射性管理費用を節減するとともに、作業効率の向上によって作業期間の短縮にも寄与する。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明に係る原子炉の水質制御方法および原子力発電プラントを改良型沸騰水原子炉一次系に適用した一実施例を示す概略系統図。

【図 2】

本実施例の炉水高温浄化装置の設置状態を示す系統図。

【図 3】

本実施例の炉水高温浄化装置の内部構造を示す概略図。

【図 4】

本発明による被爆低減効果を示す図。

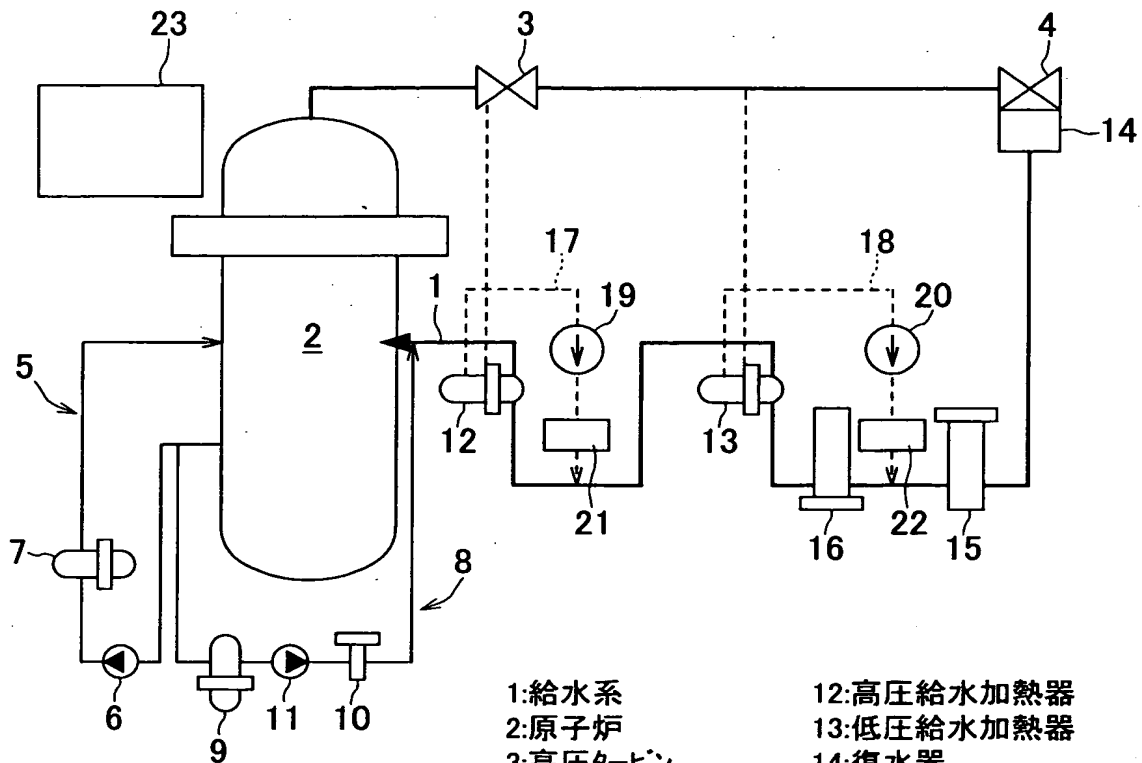
【符号の説明】

- 1 給水系
- 2 原子炉
- 3 高圧タービン
- 4 低圧タービン
- 5 RHR系
- 6 RHRポンプ
- 7 RHR熱交換器
- 8 RWC U系
- 9 RWC U熱交換器
- 10 RWC U除去装置
- 11 RWC Uポンプ
- 12 高圧給水加熱器
- 13 低圧給水加熱器
- 14 復水器
- 15 復水フィルター（鉄除去手段）
- 16 復水脱塩器
- 17 高圧給水ドレン配管
- 18 低圧給水ドレン配管
- 19 高圧ドレンポンプ

- 2 0 低圧ドレンポンプ
- 2 1 高性能鉄除去装置（鉄除去手段）
- 2 2 高性能鉄除去装置（鉄除去手段）
- 2 3 燃料交換プール
- 2 5 炉水高温浄化装置
- 2 6 ポンプ

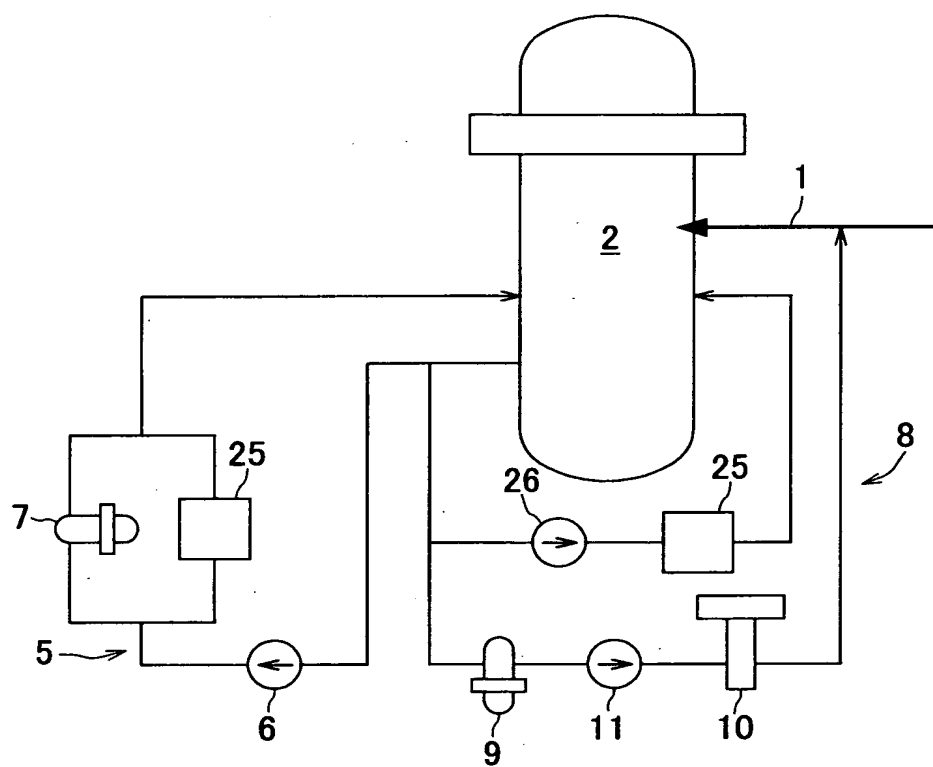
【書類名】 図面

【図 1】

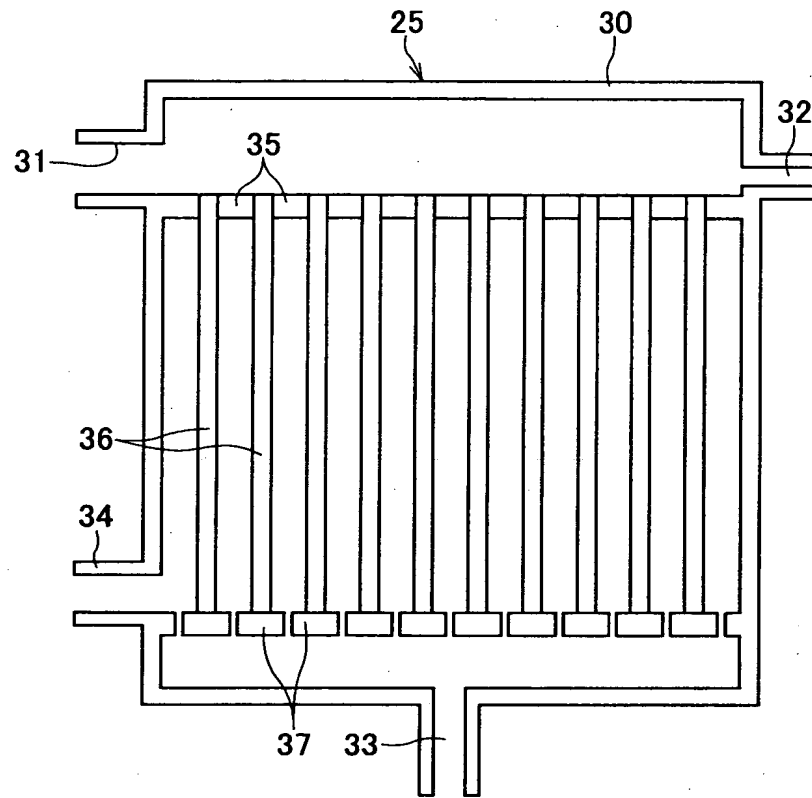


- | | |
|-------------|--------------|
| 1:給水系 | 12:高圧給水加熱器 |
| 2:原子炉 | 13:低圧給水加熱器 |
| 3:高圧タービン | 14:復水器 |
| 4:低圧タービン | 15:復水フィルター |
| 5:RHR系 | 16:復水脱塩器 |
| 6:RHRポンプ | 17:高圧給水ドレン配管 |
| 7:RHR熱交換器 | 18:低圧給水ドレン配管 |
| 8:RWCU系 | 19:高圧ドレンポンプ |
| 9:RWCU熱交換器 | 20:低圧ドレンポンプ |
| 10:RWCU除去装置 | 21:高性能鉄除去装置 |
| 11:RWCUポンプ | 22:高性能鉄除去装置 |

【図 2】

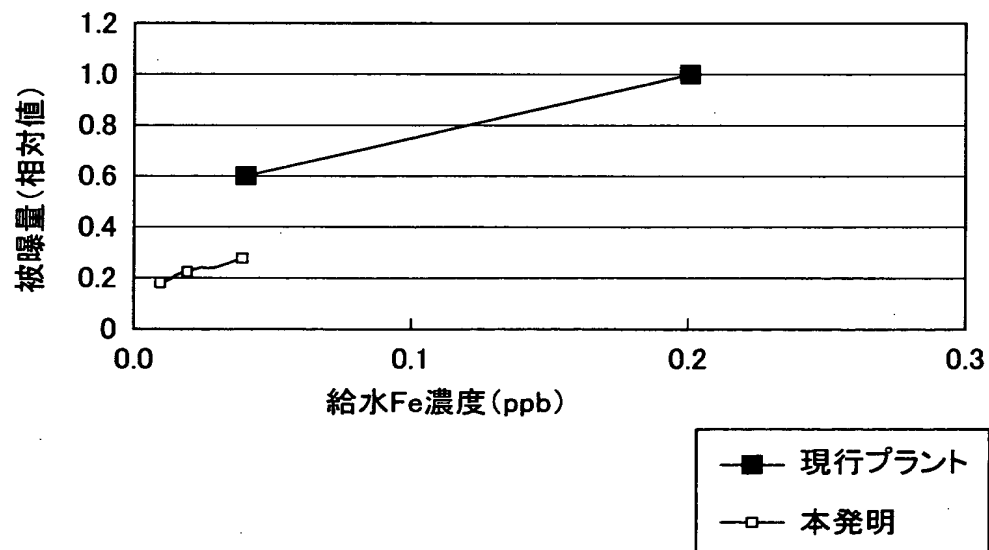


【図 3】



25: 炉水高温浄化装置
30: 容器

【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 炉水のイオンおよび粒子状物質によるコバルト放射能濃度を同時に大幅に低減し、炉心外表面へのコバルト放射能の移行量を低減する。

【解決手段】 原子炉 2 内への持ち込みおよび原子炉 2 内の構造材料から炉水中に腐食放出される鉄量を、原子炉 2 内へ持ち込まれたニッケル量および原子炉 2 内で発生したニッケル量のいずれか一方の 2 倍以上にし、原子炉 2 内への系統水の鉄の上限濃度値を 0. 1 0 p p b 以下にする。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003078]

1. 変更年月日	1990年 8月22日
[変更理由]	新規登録
住 所	神奈川県川崎市幸区堀川町72番地
氏 名	株式会社東芝